



## ORIGINAL ARTICLE

Received: 2105/12/6

Accepted: 2016/1/9

# Application of Coagulation and Flocculation Coupled with Photo Catalytic Degradation (TiO<sub>2</sub>/UV- A) for 2- (Methoxy Carbonyl Amino –methyl)-acrylic acid methyl ester dye Removal from Synthetic wastewater

Ali Toolabi(Ph.Ds)<sup>1</sup>, Zahra Derakhshan(Ph.Ds)<sup>1</sup>, Mohammad taghi Ghaneian (Ph.D)<sup>2</sup>

1. Ph.D student, in Environmental Health Engineering, Science and Technology Research Center, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran

2. Corresponding Author : Associate Professor, Environmental Science and Technology Research Center, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran Email: mtghaneian@yahoo.com Tel: 09133564547

## Abstract

**Introduction:** Effluents contain dyes because of the adverse health effects of environmental and dangerous for public health. The aim of this study was to use a combination of coagulation and flocculation processes coupled with photocatalytic degradation in dye 2- (methoxy carbonyl amino methyl) - acrylic acid methyl ester from synthetic wastewater.

**Methods:** In this study, the color removal with the help of coagulants and photocatalytic process was carried out in batch reactors. Parameters of the color concentrations, titanium oxide nanoparticles concentrations, beam intensity, contact time, pH and COD were investigated. The remaining dye concentration was determined by using a spectrophotometer.

**Results:** The results of this study showed that the color and COD removal by coagulation and flocculation process in optimum conditions, 72 and 58/5 percent obtained respectively. And subsequently by using photocatalytic process (TiO<sub>2</sub>/UV-A) highest percentage removal color and COD in concentration of 150 mg /L of nanoparticles and light intensity of 480 μw/cm<sup>2</sup>, 98 and 90.8 percent respectively, in contact time of 75 minutes and equal pH of 6 was reported.

**Conclusions:** According to results, the application of integrated process of coagulation and flocculation coupled with photocatalytic degradation (TiO<sub>2</sub>/UV- A) in dye 2- (methoxy carbonyl amino methyl) - acrylic acid methyl ester and COD under optimal conditions obtained is very impressive and can be used in wastewater treatment in the automotive industry.

**Keywords:** coagulation, flocculation, photocatalytic degradation, color 2- (methoxy carbonyl amino methyl) - acrylic acid methyl ester, wastewater automotive industry

**Conflict of interest:** The authors declared that there is no conflict of interests.



### This Paper Should be Cited as:

Application of Coagulation and Flocculation Coupled with Photo Catalytic Degradation (TiO<sub>2</sub>/UV- A) for 2- (Methoxy Carbonyl Amino –methyl)-acrylic. J Tolooebahasht Sci 2017; 16(3):34-45. [Persian]



# کاربرد فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی (TiO<sub>2</sub>/UV- A) در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر از فاضلاب سنتتیک

نویسندگان: علی طولابی<sup>۱</sup>، زهرا درخشان<sup>۱</sup>، محمد تقی قانعیان<sup>۲</sup>

۱. دانشجوی دکتری مرکز تحقیقات علوم و فناوری های محیط زیست، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت  
دانشگاه علوم پزشکی شهید صدوقی یزد

۲. نویسنده مسئول: دانشیار مرکز تحقیقات علوم و فناوری های محیط زیست، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت  
دانشگاه علوم پزشکی شهید صدوقی یزد تلفن تماس: ۰۹۱۳۳۵۶۴۵۴۷ Email: mtghaneian@yahoo.com

## چکیده

**مقدمه:** پسابهای حاوی رنگ به دلیل اثرات سوء بهداشتی و زیست محیطی برای سلامت عمومی خطرناک هستند. هدف از این مطالعه کاربرد فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر از فاضلاب سنتتیک است.

**روش بررسی:** در این تحقیق حذف رنگ مذکور به کمک مواد منعقد کننده و فرایند فتوکاتالیستی در راکتورهای ناپیوسته انجام شد. پارامترهای غلظت رنگ، غلظت نانوذرات اکسید تیتانیوم، شدت پرتو، زمان تماس، pH و COD مورد بررسی قرار گرفت. غلظت رنگ باقیمانده با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر تعیین شد.

**یافته ها:** نتایج این تحقیق نشان داد که حذف رنگ و COD توسط فرایند انعقاد و لخته سازی در شرایط بهینه به ترتیب ۷۲ و ۵۸/۵ درصد بدست آمد. و متعاقباً با استفاده از فرایند فتوکاتالیستی (TiO<sub>2</sub>/UV- A) بیشترین درصد حذف رنگ و COD در غلظت ۱۵۰ میلی گرم در لیتر نانو ذره و با شدت اشعه ۴۸۰ میکرو وات بر سانتی متر مربع به ترتیب ۹۸ و ۹۰/۸ درصد در طی زمان تماس ۷۵ دقیقه و pH برابر ۶ گزارش شد.

**نتیجه گیری:** با توجه به نتایج بدست آمده، کاربرد فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی (TiO<sub>2</sub>/UV- A) در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر و COD تحت شرایط بهینه بدست آمده بسیار موثر بوده و میتوان از آن در تصفیه فاضلاب صنعت خودروسازی استفاده نمود.

**واژه های کلیدی:** انعقاد و لخته سازی، تجزیه فتوکاتالیستی، رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر، فاضلاب صنعت خودروسازی

## طلوع بهداشت

دو ماهنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال شانزدهم

شماره: سوم

مرداد و شهریور ۱۳۹۶

شماره مسلسل: ۶۳

تاریخ وصول: ۱۳۹۴/۹/۱۵

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۴/۱۰/۱۹



## مقدمه

بر آورد سالیانه تولید مواد رنگزا در جهان رقمی بیش از ۷۰۰ هزار تن است. این مواد در صنایع مختلفی مانند نساجی، خودروسازی، داروسازی، پلاستیک سازی، مواد غذایی و آرایشی، چرم و... استفاده می شوند (۱،۲). در سالهای اخیر با افزایش در خواست خودرو، صنایع خودروسازی در جهان رشد چشمگیری داشته است. این رشد هم در تعداد خودرو و هم در تعداد شرکتهای تولیدی بوده است (۱،۳). که این امر با افزایش مصرف مواد رنگزا، تولید فاضلاب صنعتی و تغییر کیفیت آن همراه بوده است، رنگ یکی از مهمترین ترکیبات موجود در پساب صنایع خودروسازی است (۱،۴). رنگهای استفاده شده در صنایع خودروسازی بر دو پایه اسیدی و بازی شامل رنگهای اپوکسی، آکریلیک، پلی اورتان، پلی استر، هاردنر پلی آمید و پلی پروپیلن هستند (۳). مواد رنگی موجود در فاضلاب به دلیل سمیت بر روی موجودات آبی، اختلال در کارایی سیستم های متداول تصفیه فاضلاب و زیبا شناختی محیط مورد توجه است (۵،۶). از نظر بهداشتی رنگ ها دارای خاصیت سرطانزایی و جهش زایی بوده و می توانند باعث آلرژی و مشکلات پوستی شوند (۷-۹). مواد رنگزا به دلیل مصنوعی بودن و داشتن ساختار مولکولی آروماتیک پیچیده، در محیط پایدار بوده و قابلیت تجزیه پذیری کمی دارند (۱۰). امروزه آلودگی منابع آب بوسیله آلاینده های رنگی، یک مشکل عمده و بزرگ برای محیط زیست محسوب می گردد. وجود رنگ مانع عبور نور شده و فعالیت فتوسنتزی را مختل می کند و از طرف دیگر رنگ با یون های فلزی تشکیل پیوند داده و تولید ترکیباتی می کند که برای ماهیان و سایر میکروارگانیسم های موجود در آب سمی

هستند (۸،۱۱). حذف رنگ از فاضلاب های صنعتی با روش های گوناگون نظیر انعقاد و لخته سازی، تصفیه بیولوژیکی، اکسیداسیون شیمیایی، تصفیه الکتروشیمیایی، تعویض یون، فرایندهای تلفیقی مانند استفاده از مواد جاذب و فرایندهای فتوکاتالیستی با نانوذرات، فرایند جذب سطحی و فیلتراسیون غشایی امکانپذیر است. اکثر موارد فوق هزینه بر، کم راندمان و تولید لجن با حجم بالا دارند و همچنین دارای محصولات جانبی خطرناک می باشند (۱۲،۱۳، ۲). در این میان استفاده از فرایند های تلفیقی همراه با تجزیه فتوکاتالیستی با نانوذرات به دلیل بازدهی بالا، عدم تولید محصولات ثانویه خطرناک، غیر حساس بودن به آلاینده ها، استفاده مجدد از پساب و قابلیت بازیافت آلاینده های حذف شده توسط این روش برتری دارند (۱۴،۱۵، ۴). مواد منعقد کننده به تنهایی قادر به حذف کامل رنگ نمی باشند (۱۶-۱۴) بنابراین در مواقع استفاده از این مواد بهتر است جهت حذف بیشتر رنگ بصورت فرایندهای ترکیبی با موادی مانند نانوذرات دی اکسید تیتانیوم، اکسید روی، اکسید آهن همراه با اشعه UV که خاصیت فتوکاتالیستی دارند استفاده شود (۱۹، ۱۸، ۱۷، ۱۵، ۹). امروزه از فرایند  $TiO_2/UV$  بعنوان یکی از روشهای اکسیداسیون پیشرفته در تجزیه آلاینده ها از آب و فاضلاب استفاده میشود (۱۷).

اساس کار فرایند اکسیداسیون پیشرفته تولید رادیکالهای فعال هیدروکسیل می باشد این رادیکال ها می توانند سبب اکسید نمودن آلاینده های سمی و مضر در منبع آبی شوند (۲۰، ۱۸). Ferraz و همکاران در سال ۲۰۱۳ در برزیل راندمان حذف مواد رنگی موجود در فاضلاب توسط فرایند فتوکاتالیستی با نانوذرات دی اکسید تیتانیوم را ۸۷ تا ۹۷ درصد



شد. نرم افزار مورد استفاده برای آنالیز داده ها نرم افزار Excel و Spss نسخه ۱۷ بود.

برای بررسی تاثیر زمان تماس در فرایند انعقاد و لخته سازی، ۳۰۰ میلی لیتر از رنگ - (Methoxy Carbonyl Amino)-2- mg/L methyl-acrylic acid methyl ester با غلظت اولیه ۱۰۰ تهیه شد. سپس pH آنها با افزودن اسید کلریدریک و محلول سود ۰/۱ نرمال در محدوده خنثی برابر ۷ تنظیم گردید. مقدار ۵۰ mg/L از مواد منعقد کننده سولفات فرو و سولفات آلومینیوم به آنها اضافه و توسط همزن به مدت یک دقیقه با دور rpm ۱۲۰ به هم زده شد و پس از رسیدن دور به rpm ۲۰ هر ۱۵ دقیقه یکبار (۱۵، ۳۰، ۴۵، ۶۰، ۷۵، ۹۰، ۱۰۵، ۱۳۵، ۱۲۰ دقیقه) نمونه گیری انجام گرفت و سپس توسط دستگاه اسپکتوفتومتر UV-vis در طول موج ۴۸۰ تا ۶۶۰ نانومتر غلظت رنگ باقیمانده مشخص و بدین ترتیب راندمان حذف رنگ در هر زمان بدست آمد (۲۲). برای بررسی تاثیر pH بر میزان حذف رنگ، ۳۰۰ میلی لیتر از رنگ - (Methoxy Carbonyl Amino)-2- mg/L methyl-acrylic acid methyl ester با غلظت اولیه ۱۰۰ mg/L تهیه شد و pH آنها با افزودن اسید کلریدریک و محلول سود ۰/۱ نرمال در محدوده ۲، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۱۰ تنظیم گردید. سپس مقدار ۱۰۰ mg/L از مواد منعقد کننده سولفات فرو و سولفات آلومینیوم بطور مجزا به این محلول ها افزوده شد و توسط همزن با دورهای rpm ۱۲۰ و rpm ۲۰ عمل انعقاد و لخته سازی در زمان تماس بهینه بدست آمده در مرحله قبل انجام شد. پس از صاف کردن، توسط دستگاه اسپکتوفتومتر UV-vis غلظت رنگ باقیمانده مورد بررسی و pH بهینه بدست آمد. برای بررسی تاثیر غلظت اولیه رنگ، محلولهای که حاوی غلظت های

در مدت زمان ۲۴۰ دقیقه دانستند (۲۱). Kakanandi و همکاران در سال ۲۰۱۳ در ایران استفاده از فرایند کامپوزیتی نانو ذرات و پودر کربن فعال در حذف رنگ RB5 از فاضلاب سنتتیک را موثر دانستند (۲). Ying و همکاران در سال ۲۰۱۴ در چین کاربرد فرایند تلفیقی نانو ذرات و مواد منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید در حذف رنگ و مواد آلی از فاضلاب را در شرایط بهینه به ترتیب ۹۷/۳، ۸۲ درصد دانستند (۱۹). Zhang و همکاران در سال ۲۰۱۴ در چین به شکل موفقیت آمیزی استفاده از نانوذرات اصلاح شده در حذف رنگ از محلولهای آبی را موثر دانستند (۹). لذا هدف از انجام این مطالعه بررسی کارایی فرایند کاربرد فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توأم با تجزیه فتوکاتالیستی در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو-متیل) - آکرلیک اسید متیل استر از فاضلاب سنتتیک می باشد تا بتوان تحت شرایط بهینه این مطالعه، بهترین حالات حذف رنگ مذکور را بدست آورد.

### روش بررسی

مطالعه از نوع تجربی است. تمام مواد شیمیایی و وسایل مورد استفاده در این آزمایش از نمایندگی شرکت مرک آلمان خریداری شد. محلول استوک رنگ با ساختار شیمیایی زیر (شکل ۱) و نانو ذره دی اکسید تیتانیوم (یک گرم در یک لیتر آب مقطر) بصورت جداگانه تهیه شد. طبق مطالعات قبلی و آزمایشاتی که در خصوص تاثیر متغیرهای (pH، زمان تماس و...) در حذف رنگ به عنوان پیش آزمون در مطالعه حاضر انجام شد و بهترین حالات انتخاب شد. هفت غلظت از رنگ تحت شرایط نه زمان تماس، هشت حالت غلظت ماده منعقد کننده و هشت حالت pH با استفاده از روش full factorial انتخاب



تماس در طی آزمون‌ها کنترل گردید. به منظور ارزیابی تبدیل و تجزیه و همچنین مقاومت نهایی رنگ در مقابل فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی، میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیایی با استفاده از آزمون COD تعیین گردید. تمام آزمون‌ها سه بار تکرار و میانگین نتایج حاصل گزارش شد. از آنالیز تحلیل آزمون  $t$  زوج برای تعیین میانگین تفاوت بین راندمان حذف رنگ مورد بررسی توسط فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی استفاده شد. و برای مقایسه میانگین‌ها در قبل و بعد از استفاده از فرایند مذکور از آزمون Repeated measure استفاده شد.

#### یافته‌ها

فرایند انعقاد و لخته سازی مورد استفاده در این مطالعه بصورت مجزا و تحت شرایط بهینه آزمایشات در بازه زمان ۹۰ تا ۱۲۰ دقیقه قادر به حذف ۶۸ تا ۷۵ درصدی رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکریلیک اسید متیل استر شد (شکل های ۳-۵). راندمان حذف COD با استفاده از مواد منعقد کننده سولفات فرو و سولفات آلومینیوم مطابق جدول ۱ به ترتیب ۵۱ و ۴۱ درصد بدست آمد. فرایند فتوکاتالیستی در حذف COD موثر بود و با افزایش شدت اشعه میزان حذف آن افزایش پیدا کرد. بطوریکه این فرایند قادر بود در مدت زمان ۷۵ دقیقه، COD باقی مانده از نمونه‌های متاثر از مواد منعقد کننده در مرحله قبل را از ۲۷۲ و ۲۲۱ میلی گرم در لیتر به ترتیب به ۵۱ و ۴۹ میلی گرم در لیتر کاهش دهد.

مطابق نتایج حاصله با افزایش غلظت رنگ از ۵۰ تا ۲۰۰ میلی گرم در لیتر راندمان حذف رنگ توسط سولفات فرو و سولفات آلومینیوم کاهش یافت.

مختلفی از رنگ (۱۵، ۲۵، ۵۰، ۷۵، ۱۰۰، ۱۵۰، ۲۰۰ میلی گرم در لیتر) تهیه و ۱۰۰ mg/L از مواد منعقد کننده‌ها بصورت مجزا در شرایط pH و زمان تماس بهینه بدست آمده از مراحل قبل به هر کدام اضافه شد. سپس نمونه‌ها از مایع رویی برداشته شده و پس از صاف کردن، غلظت رنگ باقی مانده در محلول‌ها تعیین شد.

برای تعیین غلظت بهینه ماده منعقد کننده از غلظت‌های (۱۰ و ۲۵ و ۵۰ و ۱۰۰ و ۱۵۰ و ۲۰۰ و ۲۵۰ و ۳۰۰ میلی گرم در لیتر) استفاده شد. با استفاده از پارامترهای بهینه بدست آمده مقدار آنها برای هر دو نوع ماده منعقد کننده نیز مشخص شد. در هر کدام از مراحل فوق پس از انجام آزمایشات غلظت باقی مانده رنگ مورد سنجش قرار گرفت. برای محاسبه راندمان حذف رنگ در کلیه مراحل از معادله زیر استفاده شد.

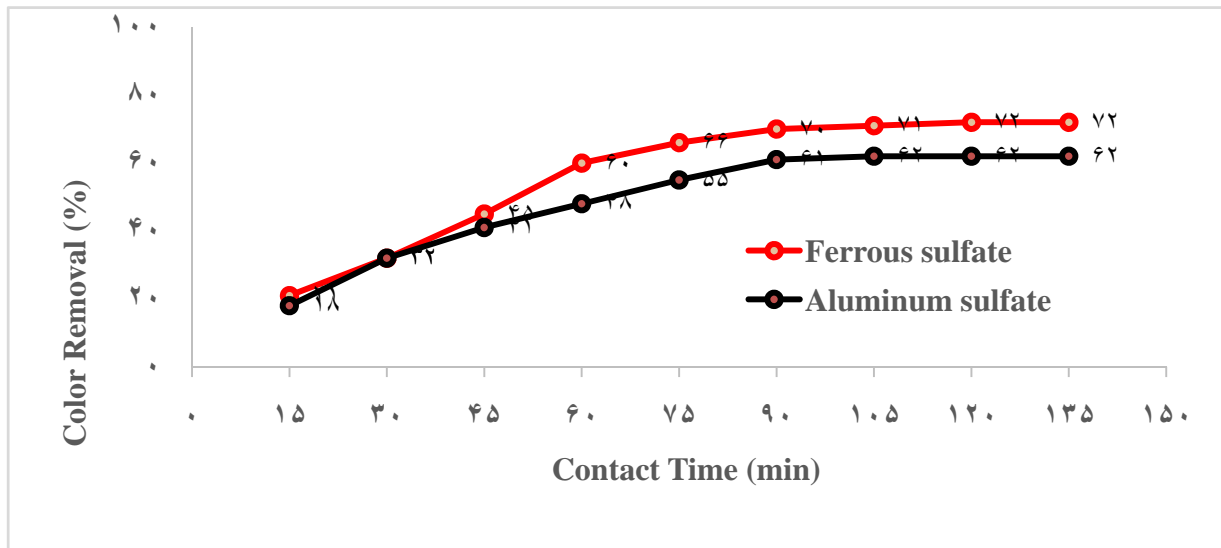
$$(1) \quad RE = \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} \times 100$$

بعد از تاثیر دادن مواد منعقد کننده بر روی نمونه‌های رنگ به منظور افزایش راندمان حذف از فرایند فتوکاتالیستی (UV-A/TiO<sub>2</sub>) استفاده شد. در این روش از یک راکتور همراه با چهار لامپ ساطع کننده اشعه UV-A، با شدت اشعه‌های تولیدی ۶۰، ۱۲۰، ۲۴۰، ۴۸۰ میکرو وات بر سانتی متر مربع در فاصله ۵ سانتی متری از سطح راکتور استفاده شد شکل و ابعاد راکتور در زیر آمده است (شکل ۲). پس از آماده کردن راکتور و تهیه محلول رنگ باقی مانده ناشی از فرایند انعقاد و لخته سازی، نانوذرات دی اکسید تیتانیوم در غلظت‌های (۲۵ mg/L، ۱۰۰، ۵۰، ۱۵۰، ۲۰۰) به ترتیب اضافه شد و پس از تنظیم pH محلول داخل راکتور در هر مرحله، پرتوتابی‌های متغییر همراه با به هم زدن تا شفاف شدن کامل رنگ صورت گرفت. زمان

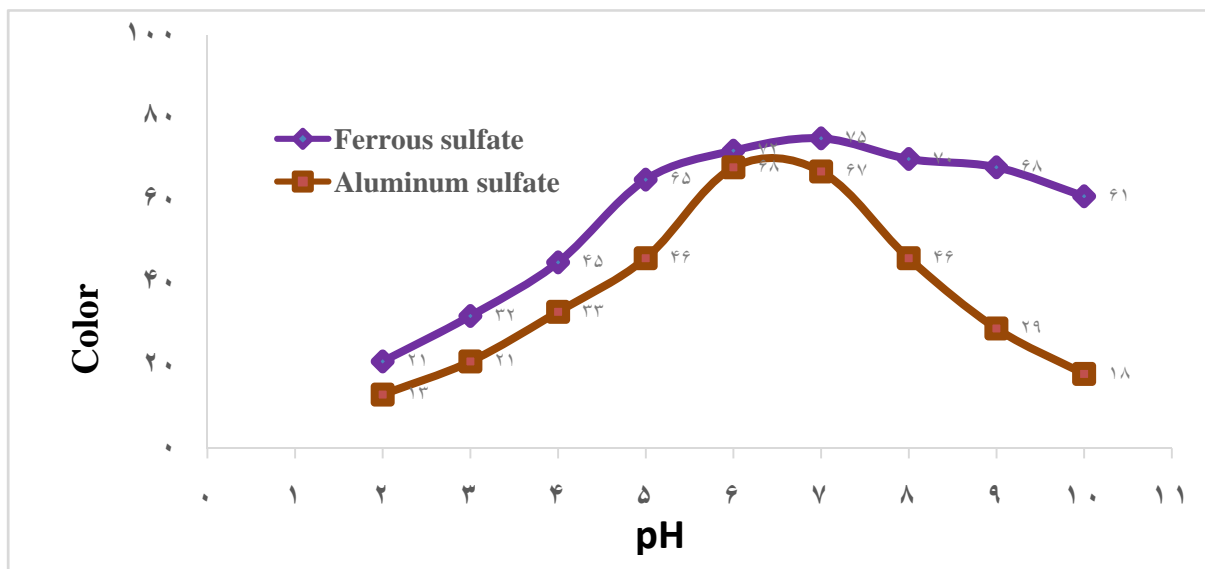


جدول ۱: مشخصات COD رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر قبل و بعد از تاثیر مواد منعقد کننده

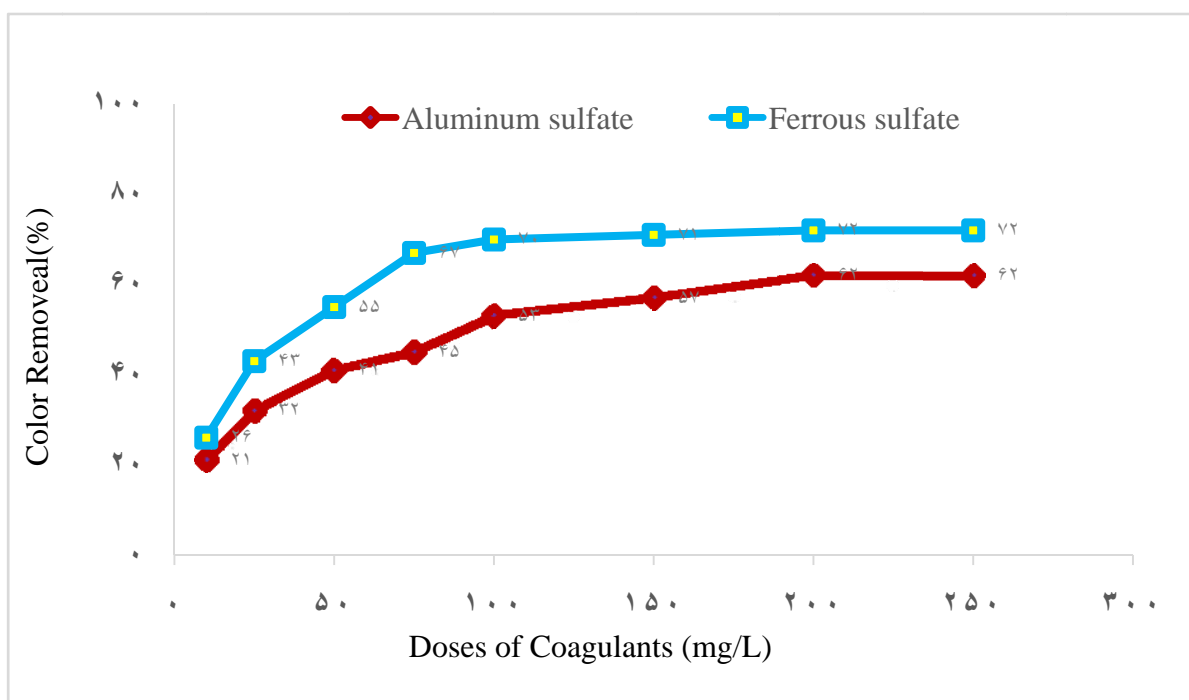
ردیف	میزان COD رنگ تصفیه نشده (mg/L)	میزان COD باقیمانده پس از تاثیر سولفات فرو (mg/L)	میزان COD باقیمانده پس از تاثیر سولفات آلومینیوم (mg/L)	غلظت ماده منعقد کننده مورد استفاده (mg/L)
۱	۵۳۳	۲۲۱	۲۷۲	۱۰۰



شکل ۲: بررسی زمان تماس در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر (غلظت مواد منعقد کننده ۱۰۰ mg/L، PH خنثی، ۱۰۰ mg/L رنگ)



شکل ۳: بررسی pH در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر (غلظت مواد منعقد کننده ۱۰۰ mg/L، ۱۰۰، زمان تماس ۱۰۰ دقیقه، غلظت رنگ ۱۰۰ mg/L)



شکل ۴: بررسی دز مواد منعقد کننده در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکریلیک اسید متیل استر (زمان تماس ۱۰۰ دقیقه، pH= 6, 7، غلظت رنگ ۱۰۰ mg/L)

است. افزایش شدت تابش و افزایش مدت پرتو یابی ارتباط مستقیمی با حذف رنگ مذکور داشت.

با افزایش شدت تابش از ۶۰ تا ۲۴۰ میکرو وات بر سانتی متر مربع، افزایش چشمگیری در سرعت حذف رنگ مشاهده شد و از ۲۴۰ تا ۴۸۰ میکرو وات بر سانتی متر مربع از شدت افزایش حذف رنگ کاسته شد.

با افزایش غلظت نانو ذرت از ۲۵ به ۲۰۰ میلی گرم در لیتر تحت تاثیر شرایط یکسان اشعه تابیده شده، میزان حذف رنگ از ۸۳ به ۹۸ درصد رسید.

در فرایند فتوکاتالیستی با افزایش pH از ۳ تا ۶ راندمان حذف رنگ تا ۹۸ درصد افزایش یافت بطوریکه این افزایش راندمان برای حذف رنگ باقیمانده ناشی از تاثیر سولفات فرو و سولفات آلومینیوم در مرحله قبل متفاوت بود.

این روند کاهشی برای سولفات فرو از ۷۲٪ به ۱۲ درصد و برای سولفات آلومینیوم از ۶۲٪ به ۱۰ درصد گزارش شد.

مطابق شکل ۳ با افزایش pH از ۳ تا ۶ راندمان حذف رنگ برای سولفات آلومینیوم افزایش یافت و برای سولفات فرو این روند افزایش حذف تا ۷ pH ادامه داشت.

همچنین دز بهینه مواد منعقد کننده سولفات فرو و سولفات آلومینیوم مطابق شکل شماره ۵ در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکریلیک اسید متیل استر به ترتیب ۱۵۰ و ۲۰۰ میلی گرم در لیتر مشاهده شد.

با بکار گیری فرایند فتوکاتالیستی (TiO<sub>2</sub>/ UV-A) بعد از تاثیر مواد منعقد کننده در حذف رنگ باقیمانده مشخص شد میزان حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکریلیک اسید متیل استر در بازه زمانی ۶۰ تا ۷۵ دقیقه ۹۶ تا ۹۸ درصد



به دست آمده با مطالعه Katrina و همکاران مطابقت داشت (۲۳). و متعاقب آن با اعمال فرایند فتوکاتالیستی (TiO<sub>2</sub>/UV- A) این میزان حذف رنگ به ترتیب به ۹۶ و ۹۸ درصد در زمان ۷۵ دقیقه مشاهده شد. با افزایش زمان تماس میزان حذف COD توسط فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی و فتوکاتالیستی نیز افزایش یافت و این فرایند قادر به کاهش میزان COD از ۵۳۳ میلی گرم در لیتر به ۴۹ تا ۵۱ میلی گرم در لیتر بود. دلیل این امر افزایش زمان کافی برای تولید رادیکالهای فعال هیدروکسیل بوده است که این رادیکالها فرصت کافی برای انجام واکنش با ماده رنگزار را فراهم می آورد و از طرفی دیگر تولید بار مثبت توسط مواد منعقد کننده بیشتر شده و در نتیجه خنثی سازی بارهای مخالف مواد آلی بیشتر و رنگ و COD بیشتر تجزیه و تبدیل میشوند (۲۴، ۱۸). نتایج حاصل از مطالعه نشان داد (شکل ۴) که pH محلول تاثیر معناداری بر میانگین حذف رنگبا استفاده از فرایند انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی داشت (P < ۰/۰۰۱). همچنین تغییرات pH محیط آزمایش تاثیر قابل توجهی در میزان حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر داشت. در pH های اسیدی بیشترین درصد حذف رنگ مشاهده شد. علل این تاثیر در تجزیه رنگ مورد نظر میتواند به تاثیر pH محیط بر هیدرولیز بهتر مواد منعقد کننده و تولید بارهای مثبت بیشتر در محلول و همچنین خصوصیات سطحی نانوذره دی اکسید تیتانیوم در شرایط یونیزاسیون رنگ مرتبط دانست. نتایج به دست آمده با مطالعات Zeng و Ehrampoush مطابقت داشت (۲۰، ۲۵). با افزایش غلظت رنگ از ۱۵ میلی گرم در لیتر به ۲۰۰ میلی گرم در لیتر راندمان

با افزایش pH از ۶ تا ۱۰ از میزان حذف رنگ کاسته شد بطوریکه این میزان به ۵۹ و ۶۳ درصد رسید.

### بحث و نتیجه گیری

با توجه به نمونه های سنتتیک فاضلاب محدودیتی از لحاظ اجرای طرح وجود نداشت. فرایندهای فتوکاتالیستی از جمله فرایندهای پاک و دوستدار محیط زیست هستند که امروزه کاربرد آنها در مقیاس وسیع مورد توجه قرار گرفته است. اساس کار فرایند اکسیداسیون پیشرفته تولید رادیکالهای فعال هیدروکسیل می باشد این رادیکال ها می توانند سبب اکسید نمودن آلاینده های سمی و مضر در منبع آبی شوند (۲۰، ۱۵). در صورتیکه قبل از فرایندهای فتوکاتالیستی از دیگر روشها مانند انعقاد و لخته سازی استفاده شود قسمتی از بار آلودگی کاسته می شود و متعاقب آن فرایند فتوکاتالیستی با عملکرد بیشتری سبب حذف آلاینده ها می شود. مطابق نتایج بدست آمده مشخص شد راندمان حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو- متیل) - آکرلیک اسید متیل استر و حذف COD توسط فرایند تلفیقی انعقاد و لخته سازی توام با تجزیه فتوکاتالیستی با افزایش زمان تماس افزایش یافته است. بطوریکه توسط فرایند معجزای انعقاد و لخته سازی این میزان حذف در زمان تماس ۱۳۵ دقیقه توسط سولفات فرو و سولفات آلومینیوم به ترتیب ۶۲ و ۷۲ درصد گزارش شد و به دلیل هزینه بر بودن زمانهای طولانی تر، زمان تماس بهینه ۹۰ دقیقه برای سولفات فرو و ۱۲۰ دقیقه برای سولفات آلومینیوم انتخاب شد. مطابق نتایج بدست آمده، عملکرد سولفات فرو در حذف رنگ مذکور نسبت به سولفات آلومینیوم نسبتاً بیشتر بود. که دلیل این امر میتواند تشکیل سریعتر لخته توسط سولفات فرو نسبت به سولفات آلومینیوم باشد. نتایج





۹۸ و ۹۰/۸ درصد مشاهده شد. این افزایش عملکرد در غلظتهای بالاتر از کاتالیست به دلیل حضور جایگاههای فعال بیشتر در سطح کاتالیست و امکان اثر بیشتر پرتوهای UVA در تجزیه و تبدیل رنگ است (۱،۹،۱۵،۲۶). نتایج حاصل از مجموعه آزمایش های انجام شده در این مطالعه نشان داد فرایند انعقاد و لخته سازی توام با فرایند فتوکاتالیستی دارای قابلیت بالایی در حذف رنگ ۲- (متوکسی کربونیل آمینو-متیل) - آکرلیک اسید متیل استر و COD از فاضلاب است و با توجه به این راندمان حذف بسیار بالا میتوان از آن در مقیاس بزرگتر استفاده نمود.

### تشکر و قدر دانی

این مطالعه حاصل یک طرح تحقیقاتی مصوب دانشگاه علوم پزشکی شهید صدوقی یزد است. نویسندگان بدینوسیله از مرکز تحقیقات علوم و فناوری های محیط زیست دانشکده بهداشت و تمامی کسانی که در این طرح همکاری داشتند تشکر و قدر دانی می نمایند.

### مشارکت نویسندگان

علی طولابی: نمونه برداری و انجام آزمایشات

زهرا درخشان: کمک به نوشتن مقاله

محمدتقی قانعیان: نظارت بر انجام کارها

حذف رنگ از ۷۲ درصد به ۱۲ درصد کاهش یافت دلیل این امر کم شدن سایت قابل دسترسی مواد منعقد کننده و متعاقب آن نانوذرات دی اکسید تیتانیوم جهت انعقاد و اکسیداسیون مولکولهای رنگ است، عبارتی دیگر در غلظتهای بالای رنگ مکانهای فعال کاتالیست و مواد منعقد کننده با یونهای رنگ پوشیده می شوند در نتیجه تولید رسوب ناشی از مواد منعقد کننده و تولید رادیکالهای هیدروکسیل ناشی از فرایند فتوکاتالیستی کاهش می یابد و رنگ به میزان کمتری حذف می شود (۸،۲۷،۲۶،۹). تعیین دز بهینه مواد منعقد کننده مصرفی به دلیل کمینه نمودن هزینه های مالی، یکی از مهمترین پارامترها تعیین عملکرد انعقاد و لخته سازی است. اثر غلظت های مختلف مواد منعقد کننده سولفات فرو و سولفات آلومینیوم در شکل ۵ نشان داده شده است.

مطابق این نتایج میزان حذف رنگ ۲- ( متوکسی کربونیل آمینو-متیل) - آکرلیک اسید متیل استر با افزایش غلظت ماده منعقد کننده افزایش یافته است، با افزایش دز ماده منعقد کننده تشکیل هیدروکسیدهای فلزی بیشتر شده و رنگ بهتر و راحت تر رسوب پیدا می کنند (۲۸). با افزایش میزان شدت اشعه از ۶۰ تا ۴۸۰ میکرو وات بر سانتی متر مربع و افزایش مقدار نانوذره تا ۱۵۰ میلی گرم در لیتر میزان حذف رنگ و COD به ترتیب تا

## References

- 1-Khezri S, Gerdi E. Recovering of Titanium dioxide from solvent- based paint sludge(case study, Iran khodro company). journal of color Science and technology 2012;6:241-6.
- 2- Kakavandi B, Kalantary RR, Esrafiy A. Isotherm, Kinetic and Thermodynamic of Reactive Blue 5 (RB5) Dye Adsorpting Using Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Nanoparticles and Activated Carbon Magnetic Composite Journal of color Science and technology 2013;7:237-48.



- 3- Streitberger H, Friedrich K, editors. Automotive Paints and Coatings. Second ed. Germany: Wiley-VCH 2008.
- 4- Xinwen L, Zhengxian C, Zuliang C. Remediation of Direct Black G in wastewater using kaolin-supported bimetallic Fe/Ni nanoparticles. Chemical Engineering Journal 2013;223:764-71.
- 5- Ahmet Z, Gulbeyi D. Removal of methylene blue from aqueous solution by dehydrated wheat bran carbon. Hazard Material 2007;146:262-9.
- 6- Fu Y, zheng WY, Su M. Hydrolysis performance of poly-Al-Fe containing zinc (PAZF) coagulant and its removal of color and organic matters. Journal of Water Process Engineering 2014;4:58-66
- 7- Golka K, Kopps S. Carcinogenicity of azo colorans: influence of solubility Left Toxic 2004;151:203-10.
- 8- Asadi A, Nateghi R, Nasserli S. Direct Poly Azo Dye Decolorization Using Nanophotocatalytic UV/NiO Process. journal of water and wastewater 2011;3:78-84.
- 9 -Zhang Y, Shen S, Wang S. A dual function magnetic nanomaterial modified with lysine for removal of organic dyes from water solution. Chemical Engineering Journal 2014;239:250- 6.
- 10- Satapanajaru T, Chompuchan C, Suntornchot P, Pengthamkeerati P. Enhancing decolorization of Reactive Black 5 and Reactive Red 198 during nano zerovalent iron treatment. Desalination 2011;266:218-30.
- 11- Paul T, Dodd MC, Strathmann TJ. Photolytic and photocatalytic decomposition of aqueous ciprofloxacin: transformation products and residual antibacterial activity. Water research 2010;44(10):3121-32.
- 12- Gang J, Zhao X, Yang H. Aqueous adsorption and removal of organic contaminants by carbon nanotubes. Science of the Total Environment 2014,482:241-51
- 13-Vakili M, Rafatullah M, Salamatinia B. Application of chitosan and its derivatives as adsorbents for dye removal from water and wastewater: A review. Carbohydrate Polymers. 2014;113:115-30.
- 14-Chong M, Jin B. Photocatalytic treatment of high concentration carbamazepine in synthetic hospital wastewater. Journal of Hazardous Materials 2012;199-200:135-42.
- 15- Masombaigi H, Rezaee1 A, Nasiri A. Photocatalytic Degradation of Methylene Blue using ZnO Nano-Particles. Iran J Health & Environ 2009;2(3):188- 95.



- 16-Khoramfar S, Arami M, Bahrami H. Dye Oxidation Using Activated Carbon/hydrogen Peroxide from Textile Colored Wastewater journal of color Science and technology. 2012;6:115-24.
- 17 -Alijani S, Mohammad V. Comparative Study on the Photodegradation of Acid Black 26 from Synthetic Wastewater using Slurry and Immobilized TiO<sub>2</sub> on the Sackcloth Fiber 2013;6(2):243-56.
- 18- Ghodsian M, Ayati B, Ganjidoust H. Determination of Optimum Amounts of Effective Parameters in Reactive Dyes Removal Using Photocatalytic Reactions by Immobilized TiO<sub>2</sub> Nano Particles on Concrete Surface Journal of water and wastewater 2012;3:45-53.
- 19- Ying F, zheng WY, Su M. Hydrolysis performance of poly-Al-Fe containing zinc (PAZF) coagulant and its removal of color and organic matters. Journal of Water Process Engineering 2014;4:58-66
- 20- Ehrampoush M, Ghaneian M, Ghanizadeh G. Application of TiO<sub>2</sub>/UV-C Photocatalytic Processes for the Removal of Reactive Red 198 GDye from Synthetic Textile Wastewater Behdasht tooohe 2012;10(3-4):69-81.
- 21- Ferraz E, Oliveira G, Grando M. Photoelectrocatalysis based on Ti/TiO<sub>2</sub> nanotubes removes toxic properties of the azo dyes Disperse Red 1, Disperse Red 13 and Disperse Orange 1 from aqueous chloride samples. Journal of Environmental Management 2013;124 108-14.
- 22- Kaniou S, Pitarakis K, Barlagianni I, Poulis I. Photocatalytic oxidation of sulfamethazine. Chemosphere 2005;60(3):372-80.
- 23- Katrina P, Yeong T. Coagulation–flocculation treatment of high-strength agro-industrial wastewater using natural Cassia obtusifolia seed gum: Treatment efficiencies and flocs characterization. Chemical Engineering Journal 2014;256:293 - 305.
- 24-Kaniou S, Pitarakis K, Barlagianni I, Poulis I. Photocatalytic oxidation of sulfamethazine. Chemosphere 2005;60:372-80.
- 25- Zeng LC, Peng S, Yun L. Treatment of highly concentrated wastewater containing multiple synthetic dyes by a combined process of coagulation/flocculation and nanofiltration. Journal of Membrane Science 2014;469:306 - 15.
- 26- Norimotlagh Z, shamsekhoramabadi G. survey photocatalytic nanoparticles ZnO on removal of Methylene Blue and COD from synthetic wastewater 2013;14(5):51-61.



27- Katrina P, Yeong T. Coagulation–flocculation treatment of high-strength agro-industrialwastewater using natural Cassia obtusifolia seed gum: Treatment efficiencies and flocs characterization. . Chemical Engineering Journal 2014;256:293 - 305.

28-Zawawi D, Halizah A, Aziz AA. Suspended Solid, Color, COD and Oil and Grease Removal from Biodiesel Wastewater by Coagulation and Flocculation Processes. Procedia - Social and Behavioral Sciences 2015;195:2407 - 11.